

⑪ Int. Cl.⁴
G 01 N 27/30識別記号 庁内整理番号
C-7363-2G

⑬ 公開 昭和62年(1987)1月21日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全8頁)

⑭ 発明の名称 塩素イオン選択性電極

⑮ 特 願 昭60-149903

⑯ 出 願 昭60(1985)7月10日

⑰ 発 明 者 渡 辺 均 東京都渋谷区幡ヶ谷2丁目43番2号 オリジナル光学工業株式会社内

⑱ 発 明 者 菅 野 敏 之 東京都渋谷区幡ヶ谷2丁目43番2号 オリジナル光学工業株式会社内

⑲ 発 明 者 浜 西 広 平 東京都渋谷区幡ヶ谷2丁目43番2号 オリジナル光学工業株式会社内

⑳ 出 願 人 オリジナル光学工業株式会社 東京都渋谷区幡ヶ谷2丁目43番2号

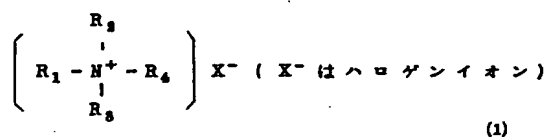
㉑ 代 理 人 弁理士 杉村 暁秀 外1名

明 細 書

1. 発明の名称 塩素イオン選択性電極

2. 特許請求の範囲

1. 高分子樹脂である支持膜物質と第4級アンモニウム塩である塩素イオン感受物とを含む感受膜を備えた塩素イオン選択性電極において、前記第4級アンモニウム塩が次式



で表され、 R_1 、 R_2 および R_3 が同一の炭素数4～8のノルマルまたはイソアルキル基、および R_4 がメチル基を示す化合物第1群、 R_1 、 R_2 および R_3 が同一の炭素数9～25のノルマルまたはイソアルキル基、および R_4 がメチル基を示す化合物第2群、および R_1 がフェニル基、 R_2 および R_3 が同一のメチル基またはアルキル基、および R_4 が炭素数10～25の

ノルマルまたはイソアルキル基を示す化合物第3群中の化合物から成る混合物であり、その混合比が重量百分率で、

第1群/第2群/第3群 = 10～80/0～90/0～90であることを特徴とする塩素イオン選択性電極。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は血液等の被検液中に存在する塩素イオンを選択的に定量するための塩素イオン選択性電極に関するものである。

(従来の技術)

イオン選択性電極(イオン電極)は、溶液中の特定イオンの活動度を電極電位として指示することができる。この電極は固体膜型と液膜型に大別され、その膜材料によつて電極のイオン選択性が決められる。

従来の塩素イオン選択性電極は、 $AgCl$ 、 Ag_2S の混合成分よりなる感受膜に代表される無機固体膜が用いられてきたが、最近ではハロゲンや硫化物

イオン等による影響が少ない等を理由に液膜型感電可塑剤を併用している。

液膜が多く用いられている。液膜型の代表的なものには、ポリ塩化ビニル(PVC)等の高分子支持体中にイオン感応物として第4級アンモニウム塩を分散させたイオン交換液膜系の感応膜を用いた塩素イオン選択性電極が知られている。この場合、液膜成分として種々の可塑剤を添加するのが一般的である。

第4級アンモニウム塩としては、トリオクチルメチルアンモニウムクロライドが最も一般的であり、他に、トリデシルメチルアンモニウムクロライド、トリヘキサデシルアンモニウムクロライド等も用いられている。支持膜材としては、PVCが膜形成の容易さから最も広く使用されており、一部エポキシ樹脂等も使われている。これらの多くは、高分子膜を軟化し、イオン感応物を溶解し、かつ目的イオンを取り込みやすくするために、通常、ジオクチルアジベート(DOA)、ジオクチルフタレート(DOP)、ニトロフェニルオクチルエーテル(NPOE)等疎水性液状物である可

(発明が解決しようとする問題点)

しかし、これら従来技術の欠点として、まず第1にあげられることは、市販の第4級アンモニウム塩が単一成分でなく、他の副反応組成物を多数含んだ混合物から成ることである。例えば市販のトリオクチルメチルアンモニウムクロライドは、アルキル鎖が炭素数8~10個のトリアルキルアンモニウム塩、およびモノアルキル、ジアルキル、アンモニウム塩を含み、その他にトリアミン各種、オクタノール等のアルコールや他の副反応組成物を含む混合物である。このような混合物は、組成比の安定化や管理が十分できず、従つて電極膜に用いた場合、常に同じ応答性や再現性が得られない場合が多い。

次に、トリオクチルメチルアンモニウムクロライドやトリヘキシルアンモニウムクロライド等の比較的アルキル鎖の短い第4級アンモニウム塩は、応答性は良好であるが、より長い長鎖アルキル基を有する他の第4級アンモニウム塩に比較し、疎

水性が小さく水に溶解しやすく、長期の測定においては、膜中から溶出して長い時間特性を維持しにくく、耐久性に欠ける。

また、トリデシルメチルアンモニウムクロライドやトリヘキサデシルアンモニウムクロライドのような長鎖アルキル基を有するトリアルキル型の場合、疎水性が大きく、それだけ長期安定性は高いが、前述のオクチルやヘキシルを有するアンモニウム塩に比べて電極出力(即ち感度)が低下する。所定の出力、応答性を得るために添加量を増すことで若干これをカバーすることが可能であるが、逆に膜の物性を低下させる原因となり、耐久性に欠け出力のバランスをとるのが困難であることが判つた。

さらに、電極の応答性を高めるために、上述のような可塑剤の添加は一般的手法であるが、膜中の液状成分が増加することにより長期の使用による膜外へのイオン感応物の溶出を抑制するのは困難となり、耐久性の低下をまねがれない。例えば、特開昭57-77952ではトリデシルメチルア

ンモニウムクロライドに可塑剤としてノルマルテトラデシルアルコールを用い、特開昭59-187851では高誘電率可塑剤と低誘電率可塑剤を併用し、応答性の改善を試みる提案が成されているが、いずれも長期耐久性の面で問題がある。

また、感応物の膜外溶出と脱落を抑えることによつて電極の耐久性を向上させようとする一手段として、撥水性ゲル化剤であるジベンザルソルビトール(DBS)をエポキシ樹脂に混合添加する方法が、特開昭58-24858に示されている。この方法は、耐久性向上の効果はあるが、DBSを添加する際にエポキシ樹脂及びイオン感応物とともに高温加熱(約150℃)しながら混合撹拌せねばならず、少なからずイオン感応物に蒸発揮散や分解を伴う。従つて、製造上十分な温度管理や条件管理が必要となり、製造法の複雑化、感応物の分解による変質や蒸発揮散による配合比率の変化等、電極の特性上極めて重大な不都合が生じる。加えて、膜のゲル化による膜中液成分の局在化が及ぼす影響として電極応答性が低下する等の

不都合もあつた。

本発明はこのような問題点に着目し、高い感度と優れた応答性を有し、かつ使用耐久性に優れ経時変化の少ない塩素イオン選択性電極を提供することを目的とする。

(問題点を解決する手段および作用)

本発明の塩素イオン選択性電極は、高分子樹脂である支持膜物質と特定の化合物群から成る第4級アンモニウム塩混合物である塩素イオン感応物とを含む感応膜を備える。

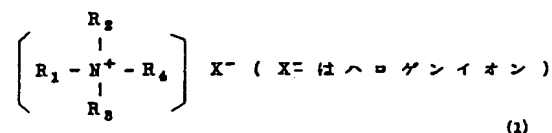
この電極の基本構成を第1図に示す。

符号1は、ポリ塩化ビニル、ポリアセタール等から成る筒状ボディ1の一方の開口端部にイオン感応膜2を形成し、ボディ1内に内部電解液8(例えばKCl 0.1 M aq)を収容する。内部電極4(例えばAg/AgCl)を内部電解液8に浸漬させる。ボディ1の他方の開口端部には、封止材5を設け、内部電解液8の蒸発、濃縮による濃度変化を防止する。

本発明に使用するイオン感応膜を構成する第4

級アンモニウム塩は、

級アンモニウム塩は、



で表され、 R_1 、 R_2 および R_3 が同一の炭素数4～8のノルマルまたはイソアルキル基、および R_4 がメチル基を示す化合物第1群、 R_1 、 R_2 および R_3 が同一の炭素数9～25のノルマルまたはイソアルキル基、および R_4 がメチル基を示す化合物第2群、および R_1 がフェニル基、 R_2 および R_3 が同一のメチル基またはアルキル基、および R_4 が炭素数10～25のノルマルまたはイソアルキル基を示す化合物第3群中の化合物を適正量配合した混合物である。

化合物第1群は初期特性が良好であるが水に溶出しやすく耐久性の面で不足な低分子量トリアルキルメチルアンモニウムヘライドである。化合物第2群は感度、応答性とも若干劣るが、耐水性大

きである。これらの関係を、特に影響の大きいヨウ素イオンの共存下で測定した結果を示す。アルキル基の炭素数の増加に伴い、塩素イオンに対する選択性の低下を示した。

これらの結果から、初期特性に関しては化合物第1群の低分子量塩化トリアルキルメチルアンモニウムが極めて有利なことがわかる。

次に、これらのサンプルを等量水中に浸漬し、第4級アンモニウム塩の水中溶出量の経時変化を測定した。その結果を第4図に示す。第4級アンモニウム塩の炭素数が増加し疎水性が増すにつれて、水中溶出量が低下し、膜中に感応物を長期間保持できることがわかる。

これらの結果から、電極特性において一長一短を有する第4級アンモニウム塩を適宜組み合わせると各々の欠点を相殺し、初期特性と耐久性が向上し、水中溶出が抑えられることを見出した。

即ち、出力特性、感度等に優れる反面、比較的 low molecular weight で疎水性が低いため水中に溶出しやすく耐久性に劣る化合物第1群と、感度応答性等は若

のため水に溶出し難く、耐久性良好な高分子量トリアルキルメチルアンモニウムヘライドである。化合物第3群は、化合物第2群とほぼ同程度の特性を有するベンジル型アルキルアンモニウムヘライドである。

これらの化合物群の電極特性を第2～4図に示す。

支持膜材としてビスフェノールA型エポキシ樹脂と、イオン感応物として塩化トリアルキルメチルアンモニウムとを 10^{-3} M / 膜で配合し感応膜を形成した。この感応膜を備えたイオン電極の初期出力(測定液: Cl⁻ 濃度 90 mEq, 120 mEq 各々を10倍量の純水にて希釈した試料液間での電位差)とアルキル基の炭素数の関係を第2図に示した。図から明らかなように、炭素数の増加に伴い初期出力は低下傾向を示す。同様にイオン感応物としてベンジル型においても、 R_4 のアルキル基の炭素数の増加に伴い、同様の出力低下を示した。

第3図には同じサンプルについて、塩素イオンに対する選択係数 (K_{Cl}^{Pot}) とアルキル基の炭素数

干低い、水に溶出し難く耐久性で優れた化合物第2群および第3群の化合物を組合せることにより、各々の長所を相乗させ、高性能、高耐久性の塩素イオン選択性電極を得た。

本発明は前記化合物第1群、第2群および第3群中の化合物より構成される混合物において、各群の配合比率が重量百分率で

第1群／第2群／第3群

—10～80／0～90／0～90

(第6図中の網点部)で表される組成範囲において各群の特徴を生かした初期特性に優れ、かつ高耐久性の塩素イオン選択性電極を得ることができた。

尚、上記配合率において、更に好ましくは

第1群／第2群／第3群

—20～80／0～50／10～80

(第6図中斜線部)の範囲で得られる混合物を用いて電極膜を形成すると、膜硬度をあげることができ、更に感応物の水溶出を抑制して耐久性向上の効果が一層増す。

ソ)オクタデシルメチルアンモニウムクロライド等の塩化物、および上述同様のカチオン構造を有する臭化物、ヨウ化物があげられる。

化合物第3群の主な物質としては、モノノルマル(またはイソ)デシルジメチルベンジルアンモニウムクロライド、ノルマル(またはイソ)ドデシルジメチルベンジルアンモニウムクロライド、モノノルマル(またはイソ)オクタデシルジメチルベンジルアンモニウムクロライド、モノノルマル(またはイソ)オクタデシルジエチルベンジルアンモニウムクロライド等の塩化物、および上述同様のカチオン構造を有する臭化物、ヨウ化物があげられる。ただし、ここに述べた物質は例示であり、これらのみに限らない。

さらに、本発明に用いる高分子樹脂である支持膜物質としては、ポリ塩化ビニル、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、塩化ビニル-塩化ビニリデン共重合体等の塩ビ系重合体、また、ポリウレタンエラストマー、ポリフッ化ビニル、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリエステル樹脂、ポリ

アミド等の熱可塑性樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、末端イソシアネートポリエステルまたは末端イソシアネートポリエーテル型硬化樹脂、ポリイソシアネートプレポリマー、ジイソシアネートオリゴマー、ポリイソシアネートプレポリマーとポリエステルポリオール(またはポリエーテルポリオール)、アクリル酸系共重合体等の熱硬化または反応性樹脂、さらには、不飽和ポリエステル樹脂や、エポキシ、ウレタン、ポリエステルシリコン樹脂等のアクリル酸またはメタクリル酸エステル、ポリエー／ポリチオール系樹脂、エポキシ樹脂等の放射線反応性樹脂等があげられる。

また、化合物第2群の主な物質としては、トリノルマルデシルメチルアンモニウムクロライド、トリイソデシルメチルアンモニウムクロライド、トリノルマル(またはイソ)ドデシルメチルアンモニウムクロライド、トリノルマル(またはイソ)テトラデシルメチルアンモニウムクロライド、トリノルマル(またはイソ)ヘキサデシルメチルアンモニウムクロライド、トリノルマル(またはイ

ソ)オクタデシルメチルアンモニウムクロライド等の臭化物、ヨウ化物があげられる。

特に、成形容易性、成膜性、添加剤等による膜物性調整の容易性、電気絶縁性、耐水性等の条件から、ポリ塩化ビニル(PVC)、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、ポリスチレン、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂等が、一般に好んで使用される。

これらの合成樹脂を周知の手法で、上記イオン

感応物と混合し成膜することにより容易にイオン感応膜を得ることができる。

以下、本発明を実施例および比較例に基づき説明する。

さらには、感応膜中への添加成分として2,4-ジエチルヘキシルフタレート(ジオクチルフタレート: DOP), ジノルマルオクチルフタレート(DNOP), ジヘキシルフタレート(DHP), ジノニルフタレート(DNP), ジイソデシルフタレート(DIDP), ジトリデシルフタレート(DTDP), ブチルベンジルフタレート(BBP), ブチルラウリルフタレート(BLP)等のフタル酸エステル系可塑剤, ジオクチルアジペート(DOA), ジオクチルアゼレート(DOZ)等の脂肪族二塩基酸エステル系可塑剤, ジエチレングリコールジベンゾエート(DEDB)等のグリコールエステル系可塑剤, トリオクチルホスフェート(TOP)等のリン酸エステル系可塑剤, エポキシ系可塑剤等を添加することができ、他に、ジベンザルソルビトール等の膜物性改質剤、界面活性剤等の表面改質剤、シリカゲル、多孔性アルミナ等の体質顔料等を添加することもできる。

以下、本発明を実施例および比較例に基づき説明する。

実施例1~18では、本発明に用いる感応膜を、第1表に示す配合割合で支持膜物質とイオン感応物および添加剤を配合して製造した。同様に第1表に示す配合割合で、比較例1~8の感応膜を製造した。

表 1

実施例	支持膜物質	イオン感応物	添加剤
1	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 NPOE
2	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
3	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
4	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
5	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
6	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
7	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
8	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
9	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
10	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
11	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
12	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
13	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
14	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
15	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
16	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
17	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
18	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	20部 DOP
比較例 1	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	40部 DOA 20部
2	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	40部 DOA 20部
3	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	40部 DOA 20部
4	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	40部 DOA 20部
5	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	40部 DOA 20部
6	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	40部 DOA 20部
7	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	40部 DOA 20部
8	PVO 40部	トリノルマルオクチルメチルアミンセリウムクロライド	40部 DOA 20部

これら実施例および比較例によつて得たイオン感応膜より構成してなる電極について、各々の出力、初期特性ならびに血清中の塩素イオン測定による耐久性試験の結果を第2表および第5図に示す。

第 2 表

試料	初期電位差(mV)	応答性	選択性	耐久性
実施例 1	5.9	○	○	○
2	6.0	○	○	○
3	5.9	○	○	○
4	6.0	○	○	○
5	6.0	△～○	○	○
6	5.9	○	○	△～○
7	5.8	○	○	○
8	5.8	△～○	○	○
9	5.8	○	○	△～○
10	6.0	○	○	○
11	6.0	○	○	○
12	5.9	○	○	○
13	6.0	○	○	○
比較例 1	6.0	○	○	×
2	5.9	○	○	×～△
3	5.4	△～○	×	△
4	6.0	○	○	×～△
5	5.7	△	△	△
6	5.5	△	×	○

0～5% …○ 良い
 5～10% …△～○ やや良い
 10～20% …△ 普通
 20～30% …×～△ やや劣る
 30%以上 …× 劣る

実施例および比較例の測定結果から、選択性および耐久性の点で本発明の電極が非常に優れていることがわかる。

各試験結果および第6図に示す三元組成図から明らかなように、前記化合物第1群および第2群、第3群より選ばれた各々の化合物を配合して得たイオン感応物のうち、その配合比率が重量百分率で、

第1群/第2群/第3群

—10～80/0～90/0～90

(第6図中、網点部の範囲)で表される組成範囲にのみ、初期特性(起電力、応答性、選択性)および耐久性が良好な電極を得た。

〔発明の効果〕

以上、本発明によれば、感応膜のイオン感応物

の(測定条件)

①初期電位差： (Cl^-) 90 mEq, 120 mEq 各々の試料を10倍量の純水にて希釈し、両者間の電位差を測定した。

②応答性：前記①の測定にて4Eの90%出力に相当する応答時間である。

5秒以内 …○

5～10秒 …△～○

10～20秒 …△

③選択性：妨害イオン I^- として $I^-/Cl^- = 1/100$ で、全体イオン強度0.1 Eq/lにて測定した。

$E_{Cl^-I^-}^{Pot}$ 10以下 …○

10～20 …△

20以上 …×

④耐久性：ヒト血清ネスコールX(Cl^-) \approx 110 mEq/lと校正用標準試料(Cl^-) \approx 90 mEq/lを1分ずつ交互に流通浸漬し、一定検体数測定後、前記①相当の条件で電極出力の経時変化を測定した。5000検体測定後の低下率(%)で示した。

として応答性に優れた化合物第1群と高耐久性の化合物第2群および/または化合物第3群から成る第4級アンモニウム塩混合物を用いたので、塩素イオンに対し、高選択性、高感度、高出力等の初期特性に優れ、かつ従来より長時間の使用にもその特性を維持し得る高耐久性を有する塩素イオン選択性電極を提供することができる。

4. 図面の簡単な説明

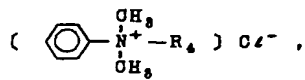
第1図は本発明の塩素イオン選択性電極の基本構成を示す概略図、

第2図は本発明に使用する第4級アンモニウム塩のアルキル基の炭素数と、イオン電極の初期出力との関係を示すグラフ、

第3図は第2図と同様のサンプルを用いアルキル基の炭素数と、塩素イオンに対する選択係数との関係を、特に影響の大きいヨウ素イオンの共存下で測定した結果を示すグラフ、

第4図は同様のサンプルを用い各アルキル基炭素数について、水中溶出量と浸漬日数との関係を示すグラフ、

(第2～4図において点線は



実験は $\left(\text{R}_3 - \text{N}^+ \begin{array}{c} \text{R}_1 \\ | \\ \text{OH}_3 \end{array} - \text{R}_3 \right) \text{Cl}^-$ を示す。)

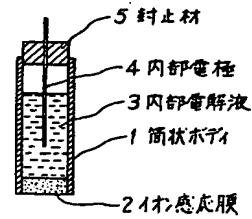
第5図は本発明実施例と比較例における電極の耐久性を示すグラフ、

(実験は実施例、点線は比較例である。)

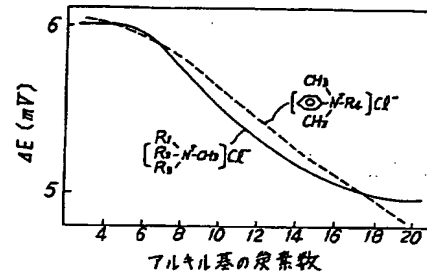
第6図は本発明実施例と比較例における化合物群の三元組成図である。尚、数字は各々の重量百分率であり、○は実施例、●は比較例を示す。

- 1…筒状ボディ 2…イオン感受膜
3…内部電解液 4…内部電極
5…封止材

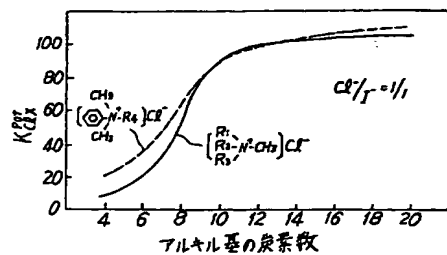
第1図



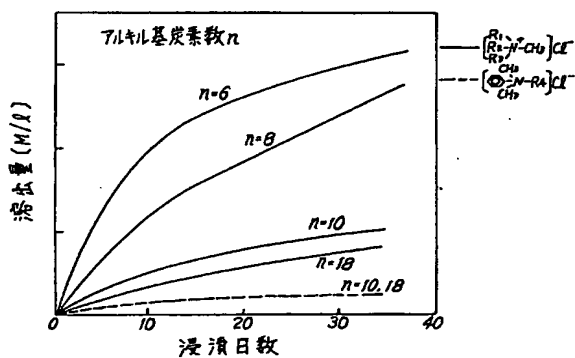
第2図



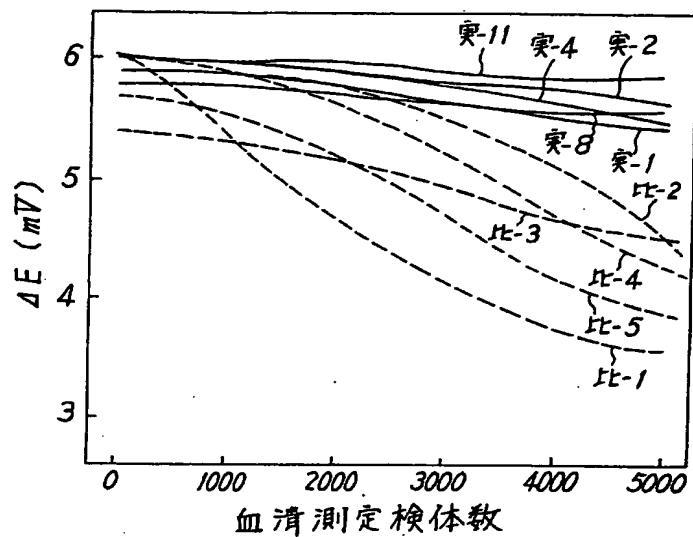
第3図



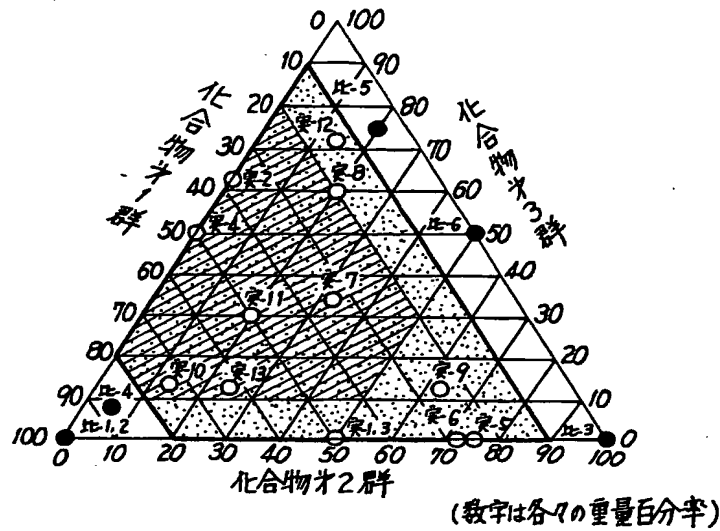
第4図



第5図



第 6 図



手 続 補 正 書

昭和 60 年 8 月 13 日

特許庁長官 賀 道 郎 殿

1 明細書第 7 頁第 18 行目「ボデイ 1」を「ボデイである。このボデイ 1」に訂正する。

2 同第 14 頁第 10 行目「ポリエステルシリコン」を「ポリエステル、シリコン」に訂正する。

1. 事件の表示

昭和 60 年 特 許 願 第 149908 号

2. 発明の名称

塩素イオン選択性電極

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

(087) オリンパス光学工業株式会社

代理人弁護士 杉 村 曉 秀 外 1 名



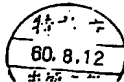
4. 代 理 人 〒100 東京都千代田区霞が関三丁目2番4号
霞山ビルディング7 階
電 話 (581) 2241 番 (代表)

(5925) 弁護士 杉 村 曉 秀 外 1 名

5.

6. 補正の対象 明細書の「発明の詳細な説明」の欄

7. 補正の内容 (別紙の通り)



方式 (公)

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 62-012846

(43)Date of publication of application : 21.01.1987

(51)Int.Cl.

G01N 27/30

(21)Application number : 60-149903

(71)Applicant : OLYMPUS OPTICAL CO LTD

(22)Date of filing : 10.07.1985

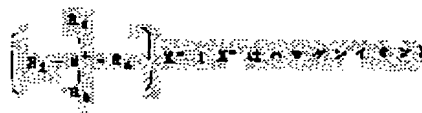
(72)Inventor : WATANABE HITOSHI
KANNO TOSHIYUKI
HAMANISHI KOHEI

(54) CHLORINE ION SELECTIVE ELECTRODE

(57)Abstract:

PURPOSE: To improve an initial characteristic and durability by incorporating a supporting film material consisting a high-polymer resin and chlorine ion sensitive material which is a quaternary ammonium salt mixture consisting of a specific compd. group.

CONSTITUTION: A chlorine ion selective electrode is formed of a sensitive film consisting of the supporting film material consisting of the high-polymer resin and the chlorine ion sensitive material consisting of the quaternary ammonium salt. The respective compds. of the group 1 expressed by the formula where R1WR3 denote an alkyl group of 4W8C, R4 denotes a methyl group, the 2nd group expressed by the formula where R1WR3 denotes an alkyl group of 9W25C, R4 denotes a methyl group and the 3rd group expressed by the formula where R1 denotes a phenyl group, R2, R3 denote a methyl group or alkyl group, R4 denotes an alkyl group of 10W25C are mixed at 10W80/0W90/0W90 the 1st group/the 2nd group/the 3rd group in percentage by weight. The electrode which takes advantage of the characteristics of the respective group in the compsn. range and has the excellent initial characteristic and high durability is thus obtd.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision]

of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office